Docket No. 250560US0/tca

OIPE
AUG 20 2004
PATENT & TRADEMARK OFFICE
JC98

IFW

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Shinsuke TOYOMASU, et al. GAU: 1711

SERIAL NO: 10/802,851 EXAMINER:

FILED: March 18, 2004

FOR: RESIN COMPOSITION FOR OPTICAL FILM, OPTICAL FILM AND PROCESS FOR PRODUCING THE OPTICAL FILM

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §120**.

☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §119(e)**: **Application No.** **Date Filed**

■ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §119**, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

COUNTRY	APPLICATION NUMBER	MONTH/DAY/YEAR
JAPAN	2003-094888	March 31, 2003
JAPAN	2004-025549	February 2, 2004

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

■ are submitted herewith

☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

☐ were filed in prior application Serial No. filed

☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and

☐ (B) Application Serial No.(s)

- ☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.
Norman F. Oblon

Corwin Paul Umbach

Corwin P. Umbach, Ph.D.
Registration No. 40,211

Customer Number
22850
Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 05/03)

BEST AVAILABLE COPY

10/802,851

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: ２００３年　３月３１日

出願番号
Application Number: 特願２００３－０９４８８８

[ST. 10/C]: [ＪＰ２００３－０９４８８８]

出願人
Applicant(s): 東ソー株式会社

CERTIFIED COPY OF
PRIORITY DOCUMENT

２００４年　３月２５日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫

出証番号　出証特２００４－３０２４７４６

【書類名】　特許願
【整理番号】　PA211-1028
【あて先】　特許庁長官殿
【国際特許分類】　C08F222/40
【発明者】
　【住所又は居所】　三重県四日市市別名６－７－５
　【氏名】　豊増　信之
【発明者】
　【住所又は居所】　愛知県海部郡蟹江町西ノ森一丁目１０２番地
　【氏名】　猪飼　陽二郎
【特許出願人】
　【識別番号】　000003300
　【氏名又は名称】　東ソー株式会社
　【代表者】　土屋　隆
　【電話番号】　(03)5427-5134
【手数料の表示】
　【予納台帳番号】　003610
　【納付金額】　21,000円
【提出物件の目録】
　【物件名】　明細書　1
　【物件名】　図面　1
　【物件名】　要約書　1
【プルーフの要否】　要

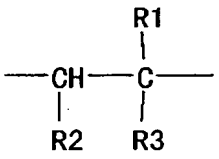
【書類名】　明細書

【発明の名称】　光学フィルム

【特許請求の範囲】

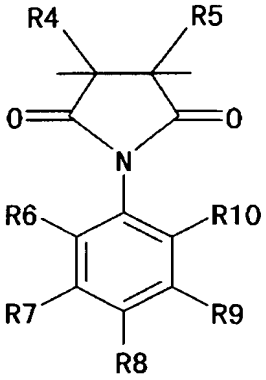
【請求項１】下記の式（ｉ）で表されるα－オレフィン単位及び式（ｉｉ）で表されるＮ－フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体（ａ）と、アクリロニトリル－スチレン共重合体（ｂ）又はアクリロニトリル－ブタジエン－スチレンユニット共重合体（ｃ）とからなる樹脂組成物であって、それぞれの共重合体の分子量がポリスチレン換算の重量平均分子量として５×１０^3以上５×１０^6以下である樹脂組成物をフィルム成形して、更にガラス転移温度（以下Ｔｇと称する）を基準として、Ｔｇ±２０℃の範囲で延伸加工し、負の複屈折性を示すことを特徴とする光学フィルム。

【化１】



（ｉ）

【化２】



（ｉｉ）

（ここで、式（ｉ）において、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３はそれぞれ水素又は炭素数１～６のアルキル基である。式（ｉｉ）において、Ｒ４、Ｒ５はそれぞれ水素又は炭素数１～８の直鎖状あるいは分岐状アルキル基であり、Ｒ６、Ｒ７、Ｒ８、Ｒ９、Ｒ１０はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、

水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数１～８の直鎖状或いは分岐状アルキル基である。）

【請求項２】請求項１に記載の光学フィルムであって、樹脂組成物中の共重合体（ａ）が３０～９５重量％であり、共重合体（ｂ）又は共重合体（ｃ）が７０～５重量％であることを特徴とする光学フィルム。

【請求項３】請求項１又は請求項２に記載の光学フィルムの延伸加工が、一軸延伸配向であることを特徴とする光学フィルム。

【請求項４】請求項１又は請求項２に記載の光学フィルムの延伸加工が、二軸延伸配向であることを特徴とする光学フィルム。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】

本発明は、耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性を示す特定の樹脂組成物を用いてなる光学フィルムに関する。

【０００２】

【従来の技術】

近年、ブラウン管型テレビモニターに代わる薄型液晶表示素子や、エレクトロルミネッセンス素子などが開発され、光学異方性を制御したフィルム材料が要求されている。透明樹脂材料は光学フィルムとして軽量性、生産性及びコストの面から多用される状況にある。

【０００３】

従来、透明樹脂材料の光学異方性を発現させる方法として、フィルムの延伸配向が行われている。この延伸配向によれば、ポリメチルメタクリレート（以下ＰＭＭＡと称する）やポリスチレン（以下ＰＳと称する）は負の複屈折性を示し、ポリカーボネート（以下ＰＣと称する）や非晶性の環状ポリオレフィン（以下ＡＰＯと称する）は正の複屈折性を示すことが知られている（例えば、非特許文献１、非特許文献２参照）。

【０００４】

しかしながら、ＰＭＭＡやＰＳはガラス転移温度（以下Ｔｇと称する）が１０

０℃付近にあり、耐熱性が不十分なことと脆いことなどから用途に制限を受けていた。一方、ＰＣやＡＰＯなどはＴｇが１４０℃程度であり、耐熱性や力学特性に優れると共に正の複屈折性を示す材料であり、透明耐熱性を示し、力学的にも優れる負の複屈折性材料がなかった。このため光学フィルムとしては、専ら正の複屈折性を示す樹脂材料を用いて製造されており、負の複屈折性を示す耐熱性の光学フィルムがなかった。

【０００５】

【非特許文献１】小池康博著、「高分子のＯｎｅ　Ｐｏｉｎｔ　１０高分子の光物性」共立出版、２０００年５月１０日発行

【非特許文献２】南　幸治著、「機能材料２０００年８月号　Ｖｏｌ．２０、Ｎｏ．８」シーエムシー出版、２０００年８月５日発行、ｐ２３－３３

【０００６】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、上述の事実に鑑みなされたものであって、その目的とするところは、耐熱性、力学性に優れかつ負の複屈折性を示す光学フィルムを提供することにある。

【０００７】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、鋭意検討した結果、α－オレフィンユニットと特定のＮ－フェニル置換マレイミドユニットから構成される共重合体（ａ）とアクリロニトリル－スチレン共重合体（ｂ）又はアクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（ｃ）とからなる樹脂組成物を用いてなる光学フィルムが所期の目的を達成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【０００８】

すなわち、本発明は、下記の式（ｉ）で表されるα－オレフィン単位及び式（ｉｉ）で表されるＮ－フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体（ａ）と、アクリロニトリル－スチレン共重合体（ｂ）又はアクリロニトリル－ブタジエン－スチレンユニット共重合体（ｃ）とからなる樹脂組成物であって、それぞれの共重合体の分子量がポリスチレン換算の重量平均分子量として５×１０^3以上５

×１０^6以下である樹脂組成物をフィルム成形して、更にガラス転移温度（以下Ｔｇと称する）を基準として、Ｔｇ±２０℃の範囲で延伸加工し、負の複屈折性を示すことを特徴とする光学フィルムに関するものである。

【０００９】

本発明の共重合体の構成単位である式（ｉ）において、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３はそれぞれ水素又は炭素数１～６のアルキル基である。ここで、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３が炭素数６を越えるアルキル置換基の場合にはガラス転移温度が著しく低下したり、このアルキル置換基が結晶化することで透明性を損なうなどの問題がある。

【００１０】

本発明において、式（ｉ）の具体的な例示としては、イソブテン、２－メチル－１－ブテン、２－メチル－１－ペンテン、２－メチル－１－ヘキセン、２－メチル－１－ヘプテン、１－イソオクテン、２－メチル－１－オクテン、２－エチル－１－ペンテン、２－メチル－２－ペンテン、２－メチル－２－ヘキセン、エチレン、プロピレン、１－ブテン及び１－ヘキセンなどのオレフィン類が挙げられ、このうち１，２－ジ置換オレフィン、特にイソブテンが好ましい。

【００１１】

これらのオレフィン類は１種又は２種以上組み合わされたものでもよく、その比率は限定されない。

【００１２】

本発明において、式（ｉｉ）において、Ｒ４、Ｒ５はそれぞれ水素又は炭素数１～８の直鎖状あるいは分岐状アルキル基であり、Ｒ６、Ｒ７、Ｒ８、Ｒ９、Ｒ１０はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数１～８の直鎖状或いは分岐状アルキル基である。

【００１３】

式（ｉｉ）において、Ｒ４、Ｒ５、Ｒ６、Ｒ７、Ｒ８、Ｒ９、Ｒ１０が炭素数８を越えるアルキル置換基の場合にはガラス転移温度が著しく低下したり、このアルキル置換基が結晶化することで透明性を損なうなどの問題がある。

【００１４】

本発明において、式（ｉｉ）の具体的な例示としては、マレイミド化合物のN置換基として無置換フェニル基及びフェニル化合物に置換基を導入したものを用いることができ、例えばN－（２－メチルフェニル）マレイミド、N－（２－エチルフェニル）マレイミド、N－（２－ｎ－プロピルフェニル）マレイミド、N－（２－イソプロピル）マレイミド、N－（２－ｎ－ブチルフェニル）マレイミド、N－（２－ｓｅｃ－ブチルフェニル）マレイミド、N－（２－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）マレイミド、N－（２－ｎ－ペンチルフェニル）マレイミド、N－（２－ｔｅｒｔ－ペンチルフェニル）マレイミド、N－（２，６－ジメチルフェニル）マレイミド、N－（２，６－ジエチルフェニル）マレイミド、N－（２，６－ジ－ｎ－プロピルフェニル）マレイミド、N－（２，６－ジ－イソプロピルフェニル）マレイミド、N－（２－メチル，６－エチルフェニル）マレイミド、N－（２－メチル，６－イソプロピルフェニル）マレイミド、N－（２－クロロフェニル）マレイミド、N－（２－ブロモフェニル）マレイミド、N－（２，６－ジクロロフェニル）マレイミド、N－（２，６－ジブロモフェニル）マレイミド、N－２－ビフェニルマレイミド、N－２－ジフェニルエーテルマレイミド、N－（２－シアノフェニル）マレイミド、N－（２－ニトロフェニル）マレイミド、N－（２，４，６－トリメチルフェニル）マレイミド、N－（２，４－ジメチルフェニル）マレイミド、N－パーブロモフェニルマレイミド、N－（２－メチル，４－ヒドロキシフェニル）マレイミド、N－（２，６－ジエチル，４－ヒドロキシフェニル）マレイミドなどが挙げられ、これらは１種又は２種以上組み合わせたものでもよく、その比率は限定されない。

【００１５】

本発明において、アクリロニトリル－スチレン共重合体（ｂ）は、その共重合体中にアクリロニトリルユニットを２０～３５重量％、スチレンユニットを８０～６５重量％含有するものを用いることができ、スチレンユニットの代わりにα－メチルスチレンユニットを用いたものでもよい。

【００１６】

アクリロニトリル－スチレン共重合体（ｂ）において、その共重合体のアクリロニトリルユニットが２０重量％を下回るものを用いた場合、αオレフィン単位

とＮ－フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体（ａ）との樹脂組成物の力学的性質が低下し、非常に脆くなるなどの問題がある。またアクリロニトリル－スチレン共重合体（ｂ）おいて、その共重合体のアクリロニトリルユニットが３５重量％を越えるものを用いた場合、熱変形温度はさほど変化しないが、アクリロニトリルの変質が生じ易く、色相が悪化したり、吸湿性が悪化するなどの問題がある。

【００１７】

本発明において、アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（ｃ）は、その共重合体中、アクリロニトリルユニットを２０～３５重量％、スチレンユニットを８０～６５重量％としたものを１００重量部として、これにブタジエンユニットを１～４０重量部としたものを用いることができ、スチレンユニットの代わりにα－メチルスチレンユニットを用いたものでもよい。

【００１８】

アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（ｃ）は、その共重合体中のアクリロニトリルユニットが２０重量％を下回る場合には、共重合体（ａ）との熱力学的な親和性が損なわれる。また、アクリロニトリルユニットが３５重量％を越える場合には、熱変形温度はさほど変化しないが、アクリロニトリルの変質が生じ易く、色相が悪化したり、吸湿性が悪化するなどの問題がある。

【００１９】

アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（ｃ）は、その共重合体中のブタジエンユニットが４０重量％を越えるものを用いた場合、共重合体（ａ）との熱力学的な親和性が損なわれ、樹脂組成物としての色相が悪化するなどの問題がある。

【００２０】

本発明の請求項に記載の式（ｉ）と式（ｉｉ）からなる共重合体（ａ）、共重合体（ｂ）及び共重合体（ｃ）の合成方法としては公知の重合法が利用できる。公知の重合法としては、例えば、塊状重合法、溶液重合法、懸濁重合法及び乳化重合法などを挙げることができるがこれに限定されるものではない。

【００２１】

また、共重合体（ａ）において、この他の合成法として、ビニル系モノマーと無水マレイン酸とを共重合反応により式（ｉ）の化合物を含む共重合体を作成して、無水マレイン酸部位に１級アミン化合物を反応させてイミド化反応を行わせることで式（ｉｉ）の化合物構造に対応するマレイミドのＮ置換基を導入して本発明の目的とする共重合体を得ることもできる。

【００２２】

この場合の１級アミンとは、式（ｉｉ）に対応するＮ－フェニル置換マレイミドが合成できるようなアニリンの２～６位置に置換基を導入した物質などを用いることができる。

【００２３】

本発明の樹脂組成物を用いてなる光学フィルムにおいて、それぞれの共重合体はその平均分子量が、ポリスチレン換算の重量平均分子量として５×１０^{3}以上５×１０^{6}以下である。重量平均分子量５×１０^{6}を越える場合、及び５×１０^{3}未満の場合には成形加工が困難となるので好ましくない。

【００２４】

本発明の光学フィルムにおいて、それぞれの樹脂組成物を用いてなるフィルムは延伸配向させることで負の複屈折性を示す。

【００２５】

共重合体（ａ）と、共重合体（ｂ）又は共重合体（ｃ）からなる樹脂組成物を得る方法としてはこれらの共重合体をインターナルミキサーや押出機などを用いて加熱溶融混練することで得ることができ、また溶剤を用いた溶液ブレンドによっても得ることが可能である。

【００２６】

本発明の光学フィルムにおいて、樹脂組成物の各共重合体の配合比率としては、特に限定されないが、耐熱性と力学特性の観点から、共重合体（ａ）３０～９５重量％、共重合体（ｂ）７０～５重量％又は共重合体（ｃ）７０～５重量％が好ましい。さらに好ましくは、耐熱性と力学特性の観点から、共重合体（ａ）４０～９０重量％、共重合体（ｂ）６０～１０重量％又は共重合体（ｃ）６０～１０重量％である。

【００２７】

本発明の光学フィルムにおける共重合体（ａ）と、共重合体（ｂ）及び／又は共重合体（ｃ）からなる樹脂組成物は熱力学的親和性を示し、透明性に優れ、耐衝撃性、強度などの力学特性が向上させ、Ｔｇが高くなり耐熱性も向上させることができる。

【００２８】

以下、光学フィルムの成形法について説明する。

【００２９】

光学フィルムは、係る樹脂組成物を押出成形法、溶液流延法（溶液キャスト法）などを用いて成形することで得ることができる。

【００３０】

以下、押出成形法によるフィルム作成方法を述べる。

【００３１】

押出成形では上述のようにして得られる共重合体をＴ型ダイスと称されるような薄いダイス隙間を通して引き取りを行うことで、任意の厚みのフィルムを得ることができる。

【００３２】

フィルム成形に用いる前述の共重合体からなる樹脂組成物は、予め８０℃から１３０℃の温度範囲にて加熱乾燥を行うことが望ましく、これにより成形のガス発泡などによる外観不良を抑制することができる。押出成形の際、望む厚みと光学純度に応じて異物を濾過するためのフィルターを設置することが望ましい。

【００３３】

押出成形条件としては加熱、剪断応力によって共重合体が溶融流動するＴｇよりも十分に高温度にて剪断速度１，０００ｓｅｃ$^{-1}$未満での加工を行うことが望ましい。ダイス通過後の溶融状態のフィルムは冷却固化のために低温度金属ロールやスチールベルトなどを利用することができる。

【００３４】

フィルムの押出成形制御は、それぞれフィルムの流動方向と幅方向及び厚み方向の分子鎖配向度ができるだけ一様であるような条件を設定することが重要であ

る。即ち、フィルムの任意部分の３次元屈折率が大きく異なると、これに続く一軸延伸配向制御によって発現させられる３次元屈折率もフィルムの評価位置によってさらに大きく異なるためである。

【００３５】

フィルムの押出成形において、得られるフィルム任意部分の３次元屈折率を出来るだけ一様にするための方法としては、広く知られる成形加工技術を用いることができる。即ち、ダイスからの樹脂の吐出を位置によって均一にする操作や、吐出後のフィルム冷却工程を均一にする操作及びこれに関する装置などが用いられる。

【００３６】

溶液流延法（溶液キャスト法）を用いて延伸配向用のフィルムを作成する場合、共重合体が可溶性を示す溶剤を選択し、その中から必要に応じて１種類又は複数用いることができる。

【００３７】

以下、溶液流延法（溶液キャスト法）によるフィルム作成方法を述べる。

【００３８】

この溶液流延法（溶液キャスト法）の溶剤としては、塩化メチレン、クロロホルム、クロルベンゼン、トルエン、キシレン、メチルエチルケトンなどを用いることができるが、溶剤の選択、組合わせについてはこれに限定されるものではない。特に、溶剤揮発速度制御の目的から良溶剤（例えば、塩化メチレン、クロロホルムなど）と貧溶剤（例えば、メタノール、エタノール等のアルコール類）を組み合わせることもできる。

【００３９】

溶液流延法（溶液キャスト法）におけるフィルムからの溶剤の除去は、加熱条件の設定により、フィルムに気泡や内部空隙を形成しないように行うことが重要であり、後に続く延伸配向操作時点にて残留溶剤濃度が数千ｐｐｍ～２ｗｔ％以下にあることが望ましい。

【００４０】

フィルムの延伸配向操作によって、均一な光学異方性を発現させるためには、

前述の溶液流延法（溶液キャスト法）などにより作成する際に不均一な配向や残留歪みがなく、光学的に等方性となるように行うことが望ましい。

【００４１】

溶液流延法（溶液キャスト法）による基材の乾燥においては、加熱条件の設定により、フィルムに気泡や内部空隙を形成しないように行うことが重要である。

【００４２】

本発明の樹脂組成物を用いてなる光学フィルムは必要に応じて熱安定剤や紫外線安定剤などの添加剤や可塑剤を加えてもよい。これら可塑剤や安定剤などの添加剤としては樹脂材料用として公知のものを使用してもよい。ただし、これらの添加剤や可塑剤は本発明の所期の目的を損なわない範囲で配合する必要がある。

【００４３】

本発明の延伸配向させた光学フィルムにおいて、一軸延伸配向法は、自由幅一軸延伸、定幅一軸延伸などがあり、これに対応する操作が可能な装置としてはロール延伸機、テンター型延伸機などが知られており、小型のものでは引張試験機、一軸延伸機、逐次二軸延伸機、同時二軸延伸機などを用いることができ、二軸延伸配向法としては、逐次二軸延伸機、同時二軸延伸機などがあり要求される光学特性に応じて用いられる。

【００４４】

延伸配向操作としては、前述の負の複屈折性を発現させる方法に記載したガラス転移温度領域とされるＴｇ－２０℃から＋２０℃の範囲内にて行うことが重要である。Ｔｇ＋２０℃を越える温度での延伸配向操作では、フィルムの複屈折はほとんど発現せず、Ｔｇ－２０℃より低温の温度領域でも延伸配向させる事が困難である。

【００４５】

本発明の一軸延伸配向させた光学フィルムにおいて、係る温度条件下にて当該樹脂組成物を用いてなる上述の無配向の光学フィルムの状態から一軸延伸配向すると、図１に示すようにフィルム面内の三次元屈折率が、延伸方向を面内のｘ軸として、面内の直交方向をｙ軸、面外の垂直方向をｚ軸と置いた場合に、ｘ軸方向屈折率をｎｘ、ｙ軸方向屈折率をｎｙ、ｚ軸方向屈折率をｎｚとすると、図２

に示すｎｚ≧ｎｙ＞ｎｘとなるものを得ることができる。

【００４６】

さらに、二軸延伸配向させた光学フィルムにおいて、同様に係る温度条件下にて当該樹脂組成物を用いてなる上述の無配向の光学フィルムの状態から二軸延伸配向すると、図１に示すようにフィルム面内の三次元屈折率が、面内の延伸方向をｘ軸及びｙ軸として、面外の垂直方向をｚ軸と置く図２の場合に、ｘ軸方向屈折率をｎｘ、ｙ軸方向屈折率をｎｙ、ｚ軸方向屈折率をｎｚとすると、図３に示すようにｎｚ＞ｎｙ≧ｎｘ又はｎｚ＞ｎｘ≧ｎｙとなるものを得ることができる。　即ち、本発明の光学フィルムは延伸配向することによって、負の複屈折性を示す。

【００４７】

本発明の光学フィルムにおいて、フィルム表面の保護を目的としてハードコートなどを施してもよく、コート剤として公知のものを用いることができる。

【００４８】

本発明の光学フィルムの屈折率は１．５０以上であり、ガラス転移温度（Ｔｇ）が１００℃以上、好ましくは１２０℃以上、特に好ましくは１４０℃以上を示すものとなる。

【００４９】

【実施例】

以下、本発明を実施例にて具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。各物性値の測定方法を以下に示す。

＜透明性；光線透過率及びヘーズ＞

①光線透過率測定はＪＩＳ　Ｋ７１５０（１９８１年版）に準拠して測定した。

【００５０】

②ヘーズ測定はＪＩＳ　Ｋ７１５０（１９８１年版）に準拠して測定した。

＜複屈折の正負判定、位相差量の測定＞

①偏光顕微鏡（λ／４板加色判定法）

栗屋裕，高分子素材の偏光顕微鏡入門，アグネ技術センター，第５章，ｐｐ

７８－８２，２００１に記載のλ／４板による加色判定法により複屈折の正負判定を実施した。

【００５１】

②偏光顕微鏡（Ｓｅｎａｒｍｏｎｔ干渉法）

栗屋裕，高分子素材の偏光顕微鏡入門，アグネ技術センター，第５章，ｐｐ９４－９６，２００１に記載のセナルモン・コンペンセーターを用いた位相差量の測定法を用いた。

＜屈折率の測定＞

ＪＩＳ　Ｋ７１４２（１９８１年版）に準拠して測定した。

＜熱的性質；ガラス転移温度の測定＞

セイコー電子製ＤＳＣを用いて測定した。

＜力学特性の判定＞

前述の溶液流延法（溶液キャスト法）によりフィルムを作成する際に、溶剤が揮発することでフィルム収縮するが、力学的に脆いものはこの時点で亀裂を生じることから、この亀裂の発生の有無を目視判定により実施した。

【００５２】

実施例１

１リッターオートクレーブ中、トルエン４００ｍｌ溶剤に対して重合開始剤としてパーブチルネオデカノエート１ｍモル存在下にてＮ－フェニルマレイミドを０．４２モルとイソブテンを４．０５モルとを６０℃、５時間重合反応させて、Ｎ－フェニルマレイミドとイソブテンからなる共重合体（ａ）（ＰＳ換算の数平均分子量Ｍｎ＝１６２，０００、分子量分布Ｍｗ／Ｍｎ＝２．６）を得た。

【００５３】

共重合体（ｂ）として、ダイセルポリマー製のアクリロニトリル－スチレン共重合体（商品名：セビアンＮ０８０、ＰＳ換算の数平均分子量Ｍｎ＝１３０，０００）を用いた。

【００５４】

この共重合体（ａ）５０重量％と共重合体（ｂ）５０重量％とからなるブレンド物を２５重量％としてこれに塩化メチレン７５重量％を加えた溶液を調整した

ものをポリエチレンテレフタレートフィルム（以下ＰＥＴと略記する）上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に１００℃にて４時間、１１０℃から１３０℃の温度にてそれぞれ１時間乾燥し、真空乾燥機にて１２０℃で４時間乾燥して約１００μｍのフィルムを得た。

【００５５】

このフィルムの光線透過率は９２％、ヘイズは０．３％、屈折率は１．５７、ガラス転移温度（Ｔｇ）は１５０℃であり、このフィルムに亀裂はなかった。

【００５６】

このフィルムから５ｃｍ×５ｃｍの小片を切り出し、柴山科学機械製の二軸延伸装置を用いて、温度１６０℃、延伸速度５ｍｍ／ｍｉｎ．の条件にて自由幅一軸延伸により＋５０％延伸した。延伸したフィルムは負の複屈折性を示しており、フィルム１００μｍ当たりの位相差量は－７０ｎｍであった。

【００５７】

実施例２

１リッターオートクレーブ中、トルエン４００ｍｌ溶剤に対して重合開始剤としてパーブチルネオデカノエート１ｍモル存在下にてＮ－（２－メチルフェニル）マレイミドを０．４２モルとイソブテンを４．０５モルとを６０℃、５時間重合反応させて、Ｎ－（２－メチルフェニル）マレイミドとイソブテンからなる共重合体（ａ）（ＰＳ換算の数平均分子量Ｍｎ＝１６０，０００、分子量分布Ｍｗ／Ｍｎ＝２．７）を得た。

【００５８】

共重合体（ｂ）として、ダイセルポリマー製アクリロニトリル－スチレン共重合体（商品名：セビアンＮ０８０、ＰＳ換算の数平均分子量Ｍｎ＝１３０，０００）を用いた。

【００５９】

この共重合体（ａ）５０重量％と共重合体（ｂ）５０重量％からなるブレンド物を２５重量％としてこれに塩化メチレン７５重量％を加えた溶液を調整したものをＰＥＴ上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に１００℃にて４時間、１１０℃から１２０℃の温度にてそれぞれ１時間乾

燥し、真空乾燥機にて１２０℃で４時間乾燥して約１００μｍのフィルムを得た。

【００６０】

このフィルムの光線透過率は８８％、ヘイズは０．５％、屈折率は１．５７、ガラス転移温度（Ｔｇ）は１５０℃であり、このフィルムに亀裂はなかった。

【００６１】

このフィルムから５ｃｍ×５ｃｍの小片を切り出し、柴山科学機械製の二軸延伸装置を用いて、温度１７０℃、延伸速度５ｍｍ／ｍｉｎ．の条件にて自由幅一軸延伸により＋５０％延伸した。延伸したフィルムは負の複屈折性を示しており、フィルム１００μｍ当たりの位相差量は－７０ｎｍであった。

【００６２】

実施例３

実施例１と同じ共重合体（ａ）を用いた。

【００６３】

共重合体（ｃ）としてダイセル製アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（商品名：セビアンＶＴ－１８０、ＰＳ換算の数平均分子量Ｍｎ＝３６，０００、Ｍｗ／Ｍｎ＝２．９）を用いた。

【００６４】

この共重合体（ａ）９０重量％と共重合体（ｃ）１０重量％からなるブレンド物を２５重量％としてこれに塩化メチレン７５重量％を加えた溶液を調整したものをＰＥＴ上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に１００℃にて４時間、１２０℃から１６０℃の温度にてそれぞれ１時間乾燥し、真空乾燥機にて１８０℃で４時間乾燥して約１００μｍのフィルムを得た。

【００６５】

このフィルムの光線透過率は８８％、ヘイズは０．９％、屈折率は１．５７、ガラス転移温度（Ｔｇ）は１９０℃であり、このフィルムに亀裂はなかった。

【００６６】

このフィルムから５ｃｍ×５ｃｍの小片を切り出し、柴山科学機械製の二軸延

伸装置を用いて、温度２１０℃、延伸速度５ｍｍ／ｍｉｎ．の条件にて自由幅一軸延伸により＋５０％延伸した。延伸したフィルムは負の複屈折性を示し、フィルム１００μｍ当たりの位相差量は－６０ｎｍであった。

【００６７】

実施例４

実施例１と同じ共重合体（ａ）、共重合体（ｂ）を用いた。

【００６８】

この共重合体（ａ）４０重量％と共重合体（ｂ）６０重量％からなるブレンド物を２５重量％としてこれに塩化メチレン７５重量％を加えた溶液を調整したものをＰＥＴ上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に６０℃にて４時間、８０℃から９０℃の温度にてそれぞれ１時間乾燥し、真空乾燥機にて９０℃で４時間乾燥して約１００μｍのフィルムを得た。

【００６９】

このフィルムの光線透過率は８８％、ヘイズは０．５％、屈折率は１．５７、ガラス転移温度（Ｔｇ）は１４０℃であり、このフィルムに亀裂はなかった。

【００７０】

このフィルムから５ｃｍ×５ｃｍの小片を切り出し、柴山科学機械製の二軸延伸装置を用いて、温度１３０℃、延伸速度５ｍｍ／ｍｉｎ．の条件にて自由幅一軸延伸により＋５０％延伸した。延伸したフィルムは負の複屈折性を示しており、フィルム１００μｍ当たりの位相差量は－３５ｎｍであった。

【００７１】

比較例１

実施例１と同様にしてＮ－フェニルマレイミドとイソブテンからなる共重合体（ａ）を得た。

【００７２】

このＮ－フェニルマレイミドとイソブテンからなる共重合体（ａ）２５重量％と塩化メチレン７５重量％の溶液を調整したものをＰＥＴフィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。

【００７３】

剥離後のフィルムを更に１００℃にて４時間、１２０℃から１６０℃の温度にてそれぞれ１時間乾燥し、真空乾燥機にて１８０℃で４時間乾燥して約１００μｍのフィルムを得た。

【００７４】

このフィルムの光線透過率は９２％、ヘイズは０．３％、屈折率は１．５７、ガラス転移温度（Ｔｇ）は１９２℃であり、このフィルムに微細な亀裂が確認された。

【００７５】

このフィルムから５ｃｍ×５ｃｍの小片を切り出し、柴山科学機械製延伸装置を用いて、温度２１０℃、延伸速度１５ｍｍ／ｍｉｎ．の条件にて自由幅一軸延伸により＋５０％延伸した。延伸したフィルムの複屈折は正であり、フィルム１００μｍ当たりの位相差量は＋７０ｎｍであった。

【００７６】

比較例２

実施例２と同様にしてＮ－（２－メチルフェニル）マレイミドとイソブテンからなる共重合体（ａ）を得た。

【００７７】

この共重合体（ａ）２５重量％と塩化メチレン７５重量％の溶液を調整したものをＰＥＴフィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に６０℃にて４時間、８０℃から９０℃の温度にてそれぞれ１時間乾燥し、真空乾燥機にて９０℃で４時間乾燥して約１００μｍのフィルムを得た。

【００７８】

このフィルムの光線透過率は８８％、ヘイズは０．５％、屈折率は１．５７、ガラス転移温度（Ｔｇ）は１０２℃であり、このフィルムに微細な亀裂が確認された。

【００７９】

このフィルムから５ｃｍ×５ｃｍの小片を切り出し、柴山科学機械製延伸装置を用いて、温度２２０℃、延伸速度５ｍｍ／ｍｉｎ．の条件にて自由幅一軸延伸

により＋５０％延伸した。延伸したフィルムの複屈折は負であり、フィルム１００μｍ当たりの位相差量は－１２０ｎｍであった。

【００８０】

【発明の効果】

本発明の光学フィルムは、耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性を必要とする光学フィルムに好適に用いることができる。

【図面の簡単な説明】

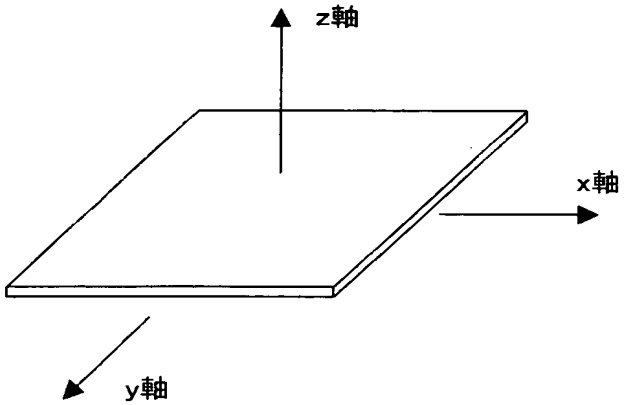
【図１】樹脂フィルムの３次元屈折率の軸方向を示す図である。

【図２】負の屈折率材料の一軸延伸による３次元屈折率を示す図である。

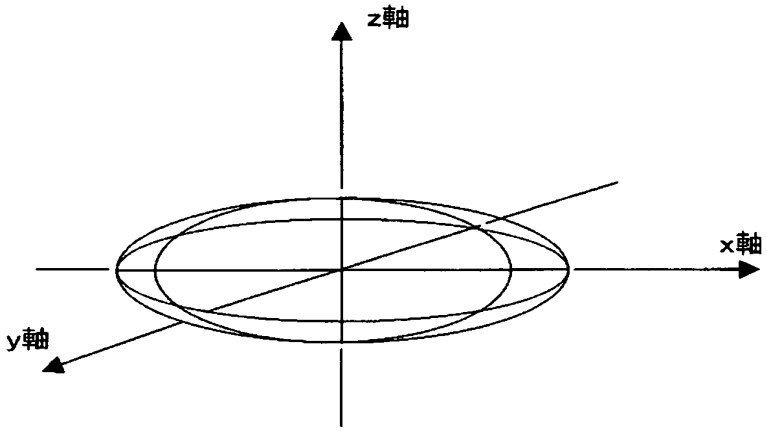
【図３】負の屈折率材料の二軸延伸による３次元屈折率を示す図である。

【書類名】図面

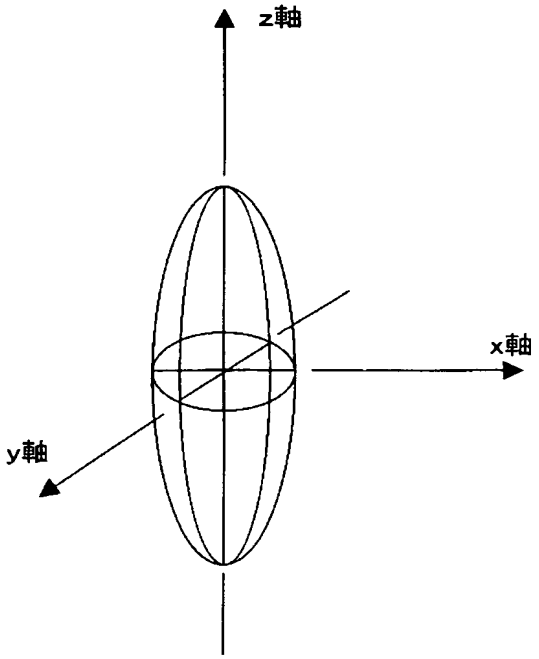
【図１】



【図２】



【図３】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】本発明の目的は、耐熱性、力学性に優れかつ負の複屈折性を示す樹脂組成物を用いてなる光学フィルムを提供することにある。

【解決手段】α－オレフィン単位及びＮ－フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体と、アクリロニトリルースチレン共重合体又はアクリロニトリルーブタジエンースチレンユニット共重合体とからなる樹脂組成物であって、それぞれの共重合体の分子量がポリスチレン換算の重量平均分子量として５×１０^{3}以上５×１０^{6}以下である樹脂組成物をフィルム成形して、更にガラス転移温度（以下Ｔｇと称する）を基準として、Ｔｇ±２０℃の範囲で延伸加工し、負の複屈折性を示す光学フィルムを用いる。

【選択図】選択図なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願２００３－０９４８８８
受付番号	５０３００５３１０６９
書類名	特許願
担当官	第六担当上席　　００９５
作成日	平成１５年　４月　１日

＜認定情報・付加情報＞

【提出日】　平成15年 3月31日

次頁無

特願２００３－０９４８８８

出　願　人　履　歴　情　報

識別番号　［０００００３３００］

１．変更年月日　１９９０年１２月　２日
［変更理由］　住所変更
住　所　山口県新南陽市開成町４５６０番地
氏　名　東ソー株式会社

２．変更年月日　２００３年　４月２１日
［変更理由］　住所変更
住　所　山口県周南市開成町４５６０番地
氏　名　東ソー株式会社